

# BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

## PRIORITY DOCUMENT

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)



REC'D 17 MAY 2004

WIPO

PCT

### Prioritätsbescheinigung über die Einreichung einer Patentanmeldung

EPO-BERLIN

28-04-2004

Aktenzeichen:

103 14 478.1

Anmeldetag:

26. März 2003

Anmelder/Inhaber:

Agrolinz Melamin GmbH, Linz/AT

Bezeichnung:

Aminotriazin-Kondensationsprodukt, Verwendung  
eines Aminotriazin-Kondensationsproduktes und  
Verfahren zur Herstellung des Aminotriazin-  
Kondensationsproduktes

IPC:

C 08 G, C 09 J, C 09 D

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 19. April 2004  
Deutsches Patent- und Markenamt

Der Präsident

Im Auftrag

Faust

## Beschreibung

Aminiotriazin-Kondensationsprodukt, Verwendung eines  
Aminiotriazin-Kondensationsproduktes und Verfahren zur  
5 Herstellung des Aminotriazin-Kondensationsproduktes

Die Erfindung betrifft ein Aminotriazin-Kondensationsprodukt  
gemäß Anspruch 1, deren Verwendung gemäß Anspruch 9 und ein  
Verfahren zu deren Herstellung gemäß Anspruch 10.

10

Aminiotriazin, insbesondere Melamin (I) ist ein sehr  
reaktionsträges Molekül und reagiert daher nur mit sehr  
reaktiven und daraus resultierend auch gefährlichen  
Substanzen (Halogene, Säurechloride, konzentrierte  
15 Salpetersäure, Cyanate, Thiocyanate, Alkylsulfate; BASF,  
Technisches Merkblatt „Melamin“, 1969, 1-18). Die  
Kondensation von Melamin mit Aldehyden ist ebenfalls bekannt,  
wobei die Umsetzung von Melamin mit Formaldehyd die einzig  
wirtschaftlich bedeutende ist. Hieraus entstehen Melamin-  
20 Formaldehyd-Harze (Ullmann's Encyclopedia of Industrial  
Chemistry, (1987), Vol A2, 130-131). Nachteilig dabei ist,  
dass insbesondere Formaldehyd als gesundheitsgefährdend  
einzustufen ist (giftig, potentiell krebserregend) und, dass  
Formaldehyd eine sehr reaktive Verbindung darstellt, so dass  
dessen Reaktionen nur schwer steuerbar sind. Weiters ist die  
Derivatisierbarkeit der primären Umsetzungsprodukte von  
Formaldehyd mit Melamin (Methylolmelamine) zum Großteil auf  
die Veretherung beschränkt.

30 Es sind auch Reaktionen von Glyoxylsäure und Glyoxal mit  
Melamin bekannt.

Die DE 42 17 181 A1 beschreibt die Verwendung der  
Kondensationsprodukte von Melamin und Glyoxylsäure und deren  
35 Salze als Additiv für hydraulische Bindemittel und Baustoffe.

Aus der DE 41 40 899 A1 ist ein Verfahren zur Herstellung

wasserlöslicher Kondensationsprodukte aus einem Gemisch von Melamin, Glyoxylsäure und Glyoxal bekannt. Die erhaltenen Kondensationsprodukte finden als Gerbmittel Verwendung.

- 5 Bei der Umsetzung von Melamin mit Glyoxylsäure besteht der Nachteil, dass ein Mol Glyoxylsäure ein Mol Melamin als Salz bindet und das überschüssige Melamin mit dem dann vorliegenden Melamin-Glyoxylsäuresalz reagieren kann. Alternativ kann ein Glyoxylsäuresalz anstatt Glyoxylsäure
- 10 eingesetzt werden. In beiden Fällen besteht der große Nachteil, dass Carbonsäuresalze aufgrund der sehr geringen Reaktivität einer Derivatisierung nur mehr unter sehr großem Aufwand zugänglich sind. Die Reaktivitätsreihenfolge sieht wie folgt aus: Carbonsäurehalogenid > Carbonsäureanhydrid >
- 15 Carbonsäureester > Carbonsäure > Carbonsäureamid > Carbonsäurenitril >> Carbonsäuresalz. Glyoxylsäure wird ausschließlich als wässrige Lösung eingesetzt.

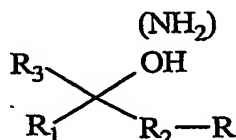
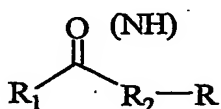
- Glyoxal polymerisiert sehr leicht zu Polyglyoxal und ist bei
- 20 Raumtemperatur eine stark reizende Substanz, die in wasserfreiem Lösungsmittel löslich ist. Die Derivatisierbarkeit der primären Umsetzungsprodukte ist, wie bei der Verwendung von Formaldehyd, auf die Veretherung beschränkt.

- Eine Aufgabe der vorliegenden Erfindung besteht darin, ein insbesondere neuartiges, formaldehydfreies Aminotriazin-Kondensationsprodukt, insbesondere ein Melamin-Kondensationsprodukt bereitzustellen, dass durch eine
- 30 Vielzahl von chemischen Transformationen einfach modifiziert werden kann.

- Diese Aufgabe wird durch ein Aminotriazin-Kondensationsprodukt gelöst, das durch eine Kondensation mit
- 35 mindestens einem Oxocarbonsäurederivat herstellbar ist.

Unter einem Oxocarbonsäurederivat (II) ist eine Verbindung zu verstehen, die sowohl mindestens eine Oxogruppe (-CO-) oder ein Derivat einer Oxogruppe (z.B. Hemiketal, Hemiacetal, Imin, Hemiaminal, Hemiamidal, sowie deren Aminoderivate) als auch mindestens ein Derivat einer Carboxylgruppe (z.B. Ester, Amid, Amidin, Iminoester, Nitril, Anhydrid, sowie die Iminoderivate des Anhydrids) im Molekül aufweist.

10 (II)



Hierbei steht R für Ester -COOR<sub>2</sub>, Amid -CONH<sub>2</sub>, substituiertes Amid -CONR<sub>1</sub>R<sub>2</sub>, Anhydrid -COOOCR<sub>1</sub>, Nitril -CN, Iminoester -CNHOR<sub>2</sub>, Amidin -CNHNH<sub>2</sub>, substituiertes Amidin -CNHNR<sub>1</sub>R<sub>2</sub>, Iminoderivate des Anhydrids -CNHOOCR<sub>1</sub>, -CNHONHCR<sub>1</sub> und -CNHNHNHCR<sub>1</sub>.

R<sub>1</sub> steht für Alkyl- und/oder Arylreste und/oder substituierte Alkyl- und/oder Arylreste und Wasserstoff H.

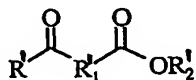
R<sub>2</sub> steht für Alkyl- und/oder Arylreste und/oder substituierte Alkyl- und/oder Arylreste.

R<sub>3</sub> steht für -OR<sub>1</sub>, -NH<sub>2</sub>, -NR<sub>1</sub>R<sub>2</sub>, -NR<sub>1</sub>COR<sub>1</sub>, -NR<sub>1</sub>CNHR<sub>1</sub>, -NR<sub>1</sub>CN, -NR<sub>1</sub>CNHNHCR<sub>1</sub>.

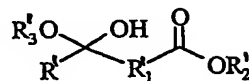
Mit Vorteil ist das Oxocarbonsäurederivat ein Oxocarbonsäureester (III) oder ein Carbonsäureesterhemiketal (IV).

30

(III)



(IV)

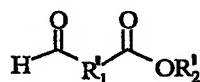


R', R'<sub>1</sub>, R'<sub>2</sub>, R'<sub>3</sub> stehen für Alkyl- und/oder Arylreste und/oder substituierte Alkyl- und/oder Arylreste, wobei für R' und R'<sub>1</sub> Arylreste und Alkylreste und/oder substituierte Alkylreste ohne alpha-H bevorzugt sind (das zur

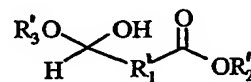
Carbonylgruppe benachbarte C-Atom hat kein Wasserstoffatom gebunden).

Bevorzugt ist das Oxocarbonsäurederivat ein Aldehydcarbonsäurederivat, mit Vorteil ein Aldehydcarbonsäureester (V) oder ein Carbonsäureesterhemiacetal (VI).  $R'_1$ ,  $R'_2$ ,  $R'_3$  stehen für Alkyl- und/oder Arylreste und/oder substituierte Alkyl- und/oder Arylreste, wobei für  $R'_1$  Arylreste und Alkylreste und/oder substituierte Alkylreste ohne  $\alpha$ -H bevorzugt sind (das zur Carbonylgruppe benachbarte C-Atom hat kein Wasserstoffatom gebunden).

(V)



(VI)

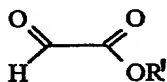


15

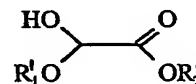
Weiterhin mit Vorteil ist das Aldehydcarbonsäurederivat ein Glyoxylsäureester (VII) und/oder ein Glyoxylsäureesterhemiacetal (VIII).

20

(VII)



(VIII)

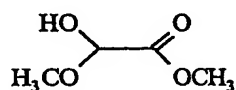


$R'$ ,  $R'_1$  und  $R'_2$  stehen für Alkyl- und/oder Arylreste und/oder substituierte Alkyl- und/oder Arylreste.

In einer besonders bevorzugten Ausführungsform ist das Aldehydcarbonsäurederivat Glyoxylsäuremethylester-methylhemiacetal (GMHA; 2-Hydroxy-2-methoxy-essigsäuremethylester) (IX).

30

(IX)



35

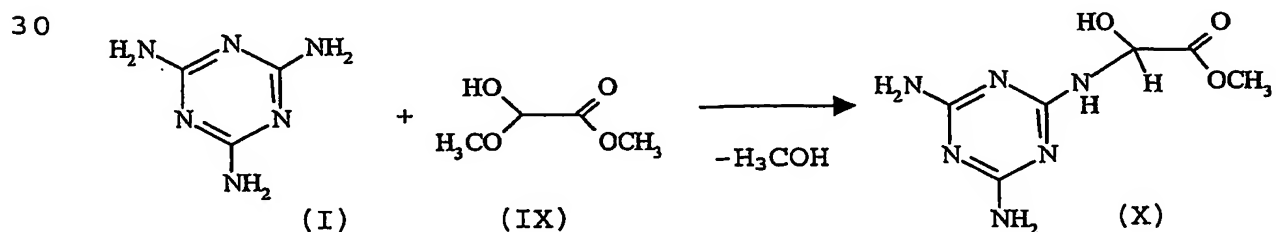
GMHA ist eine bei Raumtemperatur flüssige Verbindung, die unter Normaldruck bei Temperaturen von ca. 122 bis 124 °C

unter Methanolabspaltung polymerisiert. Im Gegensatz zu Formaldehyd ist GMHA gesundheitlich weitaus weniger bedenklich. GMHA ist großtechnisch verfügbar. Es ist sowohl in Wasser, als auch in den gängigen organischen Lösungsmitteln löslich. Somit kann die erfindungsgemäße Reaktion auch in nichtwässrigen Medien durchgeführt werden.

GMHA reagiert mit Melamin, und zwar mit oder ohne Lösungsmittel und unerwarteter Weise sogar ohne Zusatz eines Katalysators zu einer sirupartigen Lösung. Die entstehenden Verbindungen sind analog zu den bekannten Melamin-Formaldehyd-Kondensationsprodukten. Der Sirup kann durch Erhitzen unter Verbrückung ausgehärtet werden.

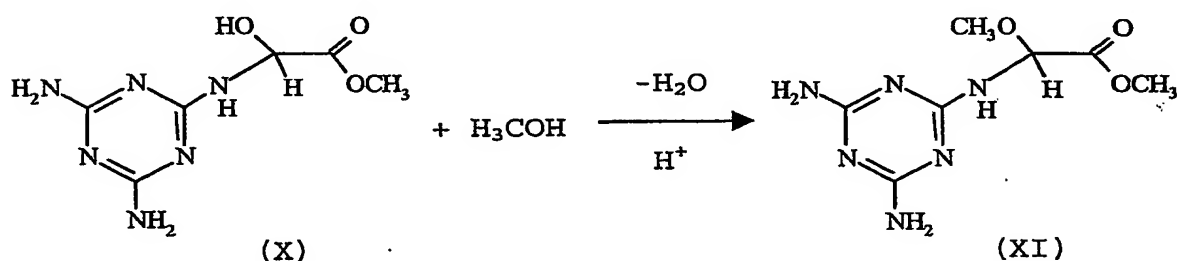
Aufgrund seiner hohen Reaktivität erhält man bei Reaktionen mit Formaldehyd ein Gemisch aus den verschiedensten Produkten mit unterschiedlichem Substitutionsgrad. Im Vergleich dazu hat GMHA eine verminderte Reaktivität. Daraus ergibt sich eine bessere Steuerbarkeit der Reaktion.

Bei der Reaktion von Melamin mit GMHA wird zuerst unter Abspaltung von Methanol 2-Hydroxy-2-Melaminyl-Essigsäuremethylester (Methyloxycarbonyl-hydroxy-methin-melamin) (X) ausgebildet. Eine Mehrfachsubstitution am Melamin ist möglich, da jede  $\text{NH}_2$ -Gruppe theoretisch zwei GMHA-Einheiten binden kann. Dabei ist anzumerken, dass die Zweitsubstitution einer  $\text{NH}_2$ -Gruppe sterisch nicht begünstigt ist.

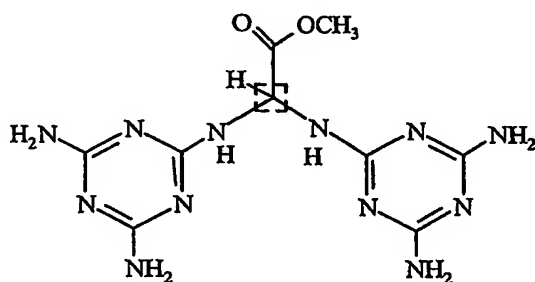


Reaktionen von Melamin mit der Esterfunktionalität sind aufgrund der geringen Reaktivität des Melamins nicht möglich.

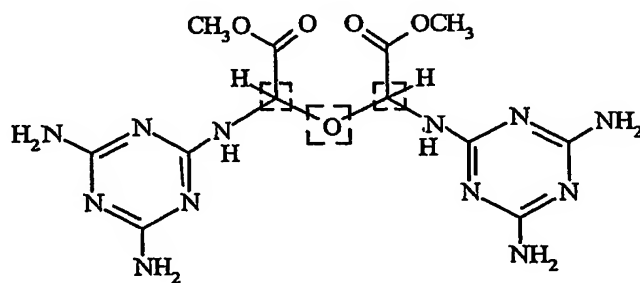
Bei der Reaktion von GMHA und Melamin kommt es ebenfalls zur Bildung von 2-Methoxy-2-Melaminyl-Essigsäuremethylester (XI). Dieses entsteht allerdings nur als Nebenprodukt. 2-Methoxy-2-Melaminyl-Essigsäuremethylester (XI) kann aber leicht aus 2-Hydroxy-2-Melaminyl-Essigsäuremethylester (X) durch Umsetzung mit Methanol im Sauren hergestellt werden.



Analog zu Melamin-Formaldehydharzen treten miteinander verknüpfte Einheiten auf, die dann auch noch mehrfach substituiert sein können. Die einfachsten Vertreter sind im Folgenden abgebildet. Links sind die Einheiten über sogenannte „Methin-Brücken“ miteinander verknüpft, rechts über sogenannte „Methin-oxy-Methin-Brücken“:



„Methin“-Verbrückung



„Methin-oxy-Methin“-Verbrückung

Die primären Reaktionsprodukte der erfindungsgemäßen Reaktion sind im Gegensatz zu Methylolmelaminen sowohl in organischen Lösungsmitteln, als auch in Wasser löslich.

- 5 Besonders hervorzuheben ist, dass die entstehenden Melamin-Kondensationsprodukte, neben der Veretherung/Umetherung analog zu den Melamin-Formaldehydharzen, durch eine große Bandbreite an möglichen Transformationen der Carboxylgruppe (z.B. Umesterung, Amididsierung,...) chemisch modifiziert  
10 werden können und somit eine große Anzahl von leicht zugänglichen Derivaten hergestellt werden kann.

- Die Herstellung der erfindungsgemäßen Kondensationsprodukte erfolgt durch die Umsetzung von Melamin mit dem  
15 Oxocarbonsäurederivat in einem einstufigen Syntheseschritt. Das Molverhältnis von Melamin zu dem Oxocarbonsäurederivat beträgt 1 : 1 bis 1 : 6, bevorzugt 1 : 1,5 bis 1 : 6.

- Die Umsetzung von Melamin mit dem Oxocarbonsäurederivat kann  
20 ohne Lösungsmittel erfolgen. Um die Reaktion besser steuern zu können wird die Umsetzung bevorzugt in einem Lösungsmittel durchgeführt. Hierfür können inerte Lösungsmittel wie Dimethylsulfoxid, Dimethylformamid oder Dioxan verwendet werden. Insbesondere werden Alkohole verwendet. Auch Wasser ist als Lösungsmittel einsetzbar.

- Bei der Umsetzung von Melamin mit GMHA ist es überraschender Weise möglich Methanol als Lösungsmittel zu verwenden. Überraschenderweise deshalb, da Methanol eigentlich die  
30 Rückreaktion fördern sollte (siehe oben). Methanol ist in diesem Fall auch deshalb vorteilhaft, da die Reaktionsprodukte in Methanol löslich sind. Bei leicht sauren Bedingungen mit einem pH-Wert zwischen 3 und 7 erfolgt im selben Schritt die Methylveretherung der  
35 Hydroxygruppe (X reagiert zu XI). Die Feststoffgehalte in den Lösungen liegen zwischen 5 und 95 m%, bevorzugt zwischen 25 und 75 m%.



Die primäre Umsetzung von Melamin mit dem Oxocarbonsäurederivat kann in allen pH-Bereichen (0-14) erfolgen. Es muß kein Katalysator zugesetzt werden.

- 5 Bevorzugt erfolgt die Umsetzung im pH-Bereich von 3 - 10. Im sauren Bereich treten neben der erwünschten primären Kondensation von Melamin mit dem Oxocarbonsäurederivat verstärkt Folgekondensationsreaktionen auf, die aber im Vergleich zur Umsetzung von Melamin mit Formaldehyd nicht so  
10 schnell zu unlöslichen Kondensationsprodukten führen.

- Die primäre Umsetzung von Melamin mit dem Oxocarbonsäurederivat erfolgt in einem Temperaturbereich von 40 bis 180 °C in einem Druckbereich von 0 bis 10 bar  
15 Überdruck. Die Reaktionszeit beträgt zwischen 5 und 120 Minuten. Während der Umsetzung löst sich das Melamin vollständig auf. Bei höheren Temperaturen verläuft die Reaktion schneller, wobei aber auch die Folgekondensationsreaktionen schneller ablaufen.

- 20 Die primären Umsetzungsprodukte können auch durch Umsetzung der Oxocarbonsäure mit Melamin in Alkohol hergestellt werden, wobei das Carbonsäureesterhemiacetal insitu in der Reaktionsmischung hergestellt wird.

In einer vorteilhaften Ausgestaltung des Verfahrens findet nach der Kondensation eine Transformation der -COOR-Gruppe statt, insbesondere eine Umesterung und/oder Amidisierung.

- 30 Die Ver-, Umetherung/Ver-, Umesterung der erfindungsgemäßen Kondensationsprodukte kann in einem Schritt mit der primären Kondensation von Melamin mit dem Oxocarbonsäurederivat durchgeführt werden. Hierbei wird die Reaktion im Sauren durchgeführt und ein Alkohol als Lösungsmittel verwendet,  
35 der dann zugleich zur Ver-, Umetherung/Ver-, Umesterung dient. Falls der Alkohol zu hoch siedet, wird der Alkohol,

im entsprechenden Molverhältnis, in einem inerten Lösungsmittel gelöst zugegeben.

Die Ver-, Umetherung/Ver-, Umesterung der erfindungsgemäßen Kondensationsprodukte wird bevorzugt in einem zweiten Reaktionsschritt durchgeführt.

Die Ver-, Umetherung/Ver-, Umesterung wird im Säuren durchgeführt, bevorzugt im pH-Bereich von 3 - 6,5. Die Reaktionstemperaturen bewegen sich im Bereich von 40 bis 180 °C und in einem Druckbereich von -1 bis 10 bar Überdruck. Die Reaktionszeit beträgt zwischen 5 und 120 Minuten. Falls ein Alkohol zur Ver-, Umetherung/Ver-, Umesterung verwendet wird, der höher siedet als das Abspaltungsprodukt, wird dieses bei der Umsetzung abdestilliert.

Folgende Alkohole sind typische Reaktionspartner: Aliphatische und aromatische Alkohole, Diöle und Polyole; Poly-, Oligoethylenglycol-Derivate (Simulsole); (Oligo-)Hydroxycarbonsäurederivate (z.B.: Caprolacton-derivate); Poly-, Oligoesterpolyole; Poly-, Oligolactide; Zucker(-derivate); Stärke(-derivate) und Cellulosederivate.

Die Amidisierung der erfindungsgemäßen Kondensationsprodukte erfolgt in einem zweiten Schritt nach der primären Kondensation von Melamin mit dem Oxocarbonsäurederivat durch Zugabe von Ammoniak- bzw. Aminlösung.

Die Amidisierung wird mit einem 2-3 fachen molaren Überschuß bezogen auf die Carboxylgruppe an Ammoniak/Amin durchgeführt. Die Reaktionstemperaturen bewegen sich im Bereich von 20 bis 150 °C und in einem Druckbereich von 0 bis 10 bar Überdruck. Die Reaktionszeit beträgt zwischen 30 und 300 Minuten.

35

Zur Aufarbeitung können die entstandenen Lösungen mittels Destillation aufkonzentriert bzw. lösungsmittelfrei gemacht

werden. Dies erfolgt entweder in einem Rührreaktor mit Destillationsaufsatz, in Dünnschichtverdampfern oder Filmtrudern. Beim Aufkonzentrieren steigt die Viskosität stark an.

5

Für besondere Einsatzzwecke können die aufkonzentrierten bzw. lösungsmittelfreien Produkte in einem Extruder unter Temperaturerhöhung bis auf 250 °C und Abziehen weiterer Kondensationsprodukte weiterkondensiert werden. Die so

10 erhaltene Schmelze wird nach dem Austritt aus dem Extruder abgekühlt und beim Abkühlen konfektioniert.

15

Feste Produkte werden durch Filtration abgetrennt und mittels Vakuum oder Trockenstickstoff unter

15 Temperaturerhöhung getrocknet.

20

In einer weiteren Ausführungsform der Erfindung ist neben mindestens einem Oxocarbonsäurederivat auch Formaldehyd und/oder Harnstoff in der Reaktionsmischung vorhanden.

20 Dies ermöglicht es, Melaminderivate mit einer großen Bandbreite an Strukturen und physikalischen Eigenschaften herzustellen.

30

Die erfindungsgemäßen Melamin-Kondensationsprodukte werden zur Herstellung von Harzen, Hybridharzen, Klebstoffen, Härtern (Vernetzern), Lacken, Chromatographiematerialien und Materialien mit flammhemmenden Eigenschaften verwendet und als organische Synthesebausteine (für Spezialchemikalien, Pharmaka) und Polymermodifikatoren eingesetzt.

35

Über die Esterfunktionalität von Derivaten der erfindungsgemäßen Melamin-Kondensationsprodukte ist der Einbau in eine Vielzahl von Polymeren möglich. Z.B. durch

35 Ver-, Umetherung/Ver-, Umesterung von (X) mit Diolen oder Polyolen (wie Ethylenglycol, Polyethylenglycolderivaten etc.)

ist eine Einkondensierung solcher Derivate bei der Polyesterherstellung möglich.

5 Eine weitere Anwendung der erfindungsgemäßen Melamin-Kondensationsprodukte besteht in der Mischung mit modifizierten Melamin-Formaldehydharzen, mit Epoxidharzen und ungesättigten Polyesterharzen zur Herstellung von Hybridharzsystemen.

10 Durch die Möglichkeit wasserfreie Produkte der erfindungsgemäßen Melamin-Kondensationsprodukte herstellen zu können kann problemlos eine Umsetzung mit Isocyanaten zu Polyurethanen erfolgen und dadurch kann Melamin reaktiv in das PU-Netzwerk eingebaut werden. Dies ist mit  
15 wasserhaltigen Produkten nicht möglich, da die Isocyanatgruppe mit Wasser sofort unter Kohlendioxid-Abspaltung hydrolysiert wird.

20 Ein weiteres Einsatzgebiet vor allem für die diol- bzw. polyol-modifizierten Melamin-Kondensationsprodukte sind intumeszierende Flammhemmersysteme, da in diesen Verbindungsklassen sowohl Treibmittel (Melamin) als auch Kohlenstoffquelle ( $C_2$ -Grundgerüst, Polyol) vorliegen.

Die Kondensationsprodukte können durch Temperatureinwirkung weiterkondensiert und schlußendlich ausgehärtet werden. Die Aushärtung kann in allen pH-Bereichen erfolgen. Bevorzugt werden die Produkte im Sauren pH 3 - 6,5 ausgehärtete.

30 Die Reaktionsprodukte der erfindungsgemäßen Reaktion sind überwiegend chirale Verbindungen, die selbst zu Polymeren aufgebaut werden können oder in andere Polymere (z.B.: Polyester) eingebaut werden können. Eine Ausnahme davon stellen lediglich mit Methin-Brücken verbundene, idente  
35 Reaktionsprodukte dar. Solche chirale Polymere sind interessant für die chirale Analytik, wobei diese Polymere als chirale Selektoren verwendet werden, die zur Auftrennung

von racemischen Gemischen eingesetzt werden. Diese Auftrennung wird auch in präparativem Maßstab durchgeführt.

## 5 Beispiele

### Beispiel 1 - Umsetzung von GMHA mit Melamin in Methanol

126 g Melamin (1 Mol), 360 g GMHA (3 Mol) und 250 g Methanol (7,8 Mol) werden in einem Kolben mit Rührer und Rückflußkühler vorgelegt. Der pH-Wert beträgt ca. 3,5. Die Suspension wird unter Rühren 60 Minuten auf Rückfluß erhitzt. Dabei entsteht eine klare Lösung der erfindungsgemäßen Melamin-Kondensationsprodukte mit ca. 53 m% Feststoffgehalt. Nach dem Abdampfen des Lösungsmittels im Vakuum bleibt eine bei Raumtemperatur hochviskose Masse übrig, die in Alkoholen, Wasser, Aceton und Estern löslich ist.

### 20 Beispiel 2 - Umsetzung von GMHA mit Melamin in Butanol

126 g Melamin (1 Mol), 360 g GMHA (3 Mol) und 580 g Butanol (7,8 Mol) werden in einem Kolben mit Rührer und Rückflußkühler vorgelegt. Der pH-Wert beträgt ca. 4,5. Die Suspension wird unter Rühren 60 Minuten auf Rückfluß erhitzt. Dabei entsteht eine klare Lösung der erfindungsgemäßen Melamin-Kondensationsprodukte mit ca. 50 m% Feststoffgehalt. Nach dem Abdampfen des Lösungsmittels im Vakuum bleibt eine bei Raumtemperatur hochviskose Masse übrig, die in Butanol, Aceton und Estern löslich ist (unlöslich in Methanol, Wasser).

### Beispiel 3 - Umsetzung des Reaktionsprodukts aus Beispiel 2 mit Simulsol BPLE (Bisphenol A modifiziertes PEG)

35

300 g lösungsmittelfreies Reaktionsprodukt aus Beispiel 2 wird in 180 g Simulsol BPLE (2 OH-Gruppen pro Molekül, M=490

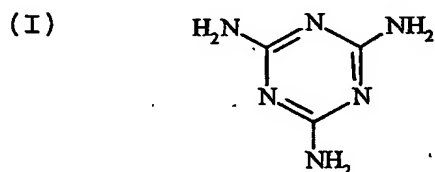
g/mol) bei 60 °C unter Rühren gelöst. Der pH-Wert beträgt ca. 5. Die Reaktionsmischung wird auf ca. 120 °C geheizt und unter Vakuum werden ca. 42 g Butanol abdestilliert. Die Reaktionsmischung wird dabei sehr viskos. Es wurde aufgrund  
5 der Stöchiometrie ein Fünftel aller Ether- bzw. Estergruppen mit Simulsol umgeethert/umgeestert. Das Reaktionsprodukt ist bei Raumtemperatur gummiartig-viskos und ist in Aceton löslich.

10 Beispiel 4 - Amidisierung des Reaktionsprodukts aus Beispiel 1 mit Ammoniak (Amidisierung)

130 g lösungsmittelfreies Reaktionsprodukt aus Beispiel 1 wird in 200 ml 25 m% Ammoniak (2,7 Mol) bei 40 °C gelöst,  
15 wobei nach kurzer Zeit sofort ein weißer Niederschlag ausfällt. Es wird bei ca. 25-30 °C noch 2 Stunden gerührt. Der Niederschlag wird abfiltriert und bei 60 °C im Vakuum getrocknet. Ausbeute ca. 105 g Produkt (91 %).

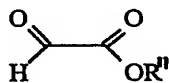
## Patentansprüche

1. Aminotriazin-Kondensationsprodukt, insbesondere Melamin-Kondensationsprodukt,  
 5 herstellbar durch,  
 die Reaktion eines Aminotriazins, insbesondere Melamin (I) mit mindestens einem Oxocarbonsäurederivat.

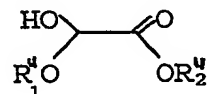


2. Aminotriazin-Kondensationsprodukt nach Anspruch 1,  
 15 dadurch gekennzeichnet,  
 dass mindestens ein Oxocarbonsäurederivat ein Ester und/oder Hemiacetal ist.
3. Aminotriazin-Kondensationsprodukt nach Anspruch 1 oder 2,  
 20 dadurch gekennzeichnet,  
 dass mindestens ein Oxocarbonsäurederivat ein Glyoxylsäureester (II) und/oder ein Glyoxylsäureesterhemiacetal (III) ist.

(II)



(III)



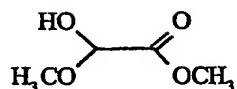
wobei:

R', R'1, R'2: Alkyl, Aryl

4. Aminotriazin-Kondensationsprodukt nach mindestens einem der vorhergehenden Ansprüche,  
 35 dadurch gekennzeichnet,  
 dass das Oxocarbonsäurederivat Glyoxylsäuremethylester-

methylhemiacetal (GMHA; 2-Hydroxy-2-methoxy-essigsäuremethylester) (IV) ist.

(IV)



5

5. Aminotriazin -Kondensationsprodukt nach mindestens einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass das Kondensationsprodukt sowohl in organischen Lösungsmitteln, als auch in Wasser löslich ist.
- 10
6. Aminotriazin -Kondensationsprodukt nach mindestens einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass neben mindestens einem Oxocarbonsäurederivat (II, III, IV) auch Formaldehyd und/oder Harnstoff in der Reaktionsmischung vorhanden sind.
- 15
7. Aminotriazin -Kondensationsprodukt nach mindestens einem vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Reaktion in einem Lösungsmittel, insbesondere Wasser, oder einem organischen Lösungsmittel abläuft.
- 20
8. Aminotriazin -Kondensationsprodukt nach mindestens einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Reaktion in methanolischer Lösung, abläuft.
- 30
9. Verwendung von Aminotriazin-Kondensationsprodukten, insbesondere Melamin-Kondensationsprodukten nach mindestens einem der vorangehenden Ansprüche, gekennzeichnet durch die Herstellung von Harzen, Klebstoffen, Härtern, Lacken, Chromatographiematerialien, organischen Synthesebausteinen, Lackzusatz-Vernetzern und Materialien mit flammhemmenden Eigenschaften sowie Gewirken.
- 35



10. Verfahren zur Herstellung von Aminotriazin -  
Kondensationsprodukten nach mindestens einem der  
Ansprüche 1 bis 8,  
5 dadurch gekennzeichnet, dass ein Aminotriazin,  
insbesondere Melamin in flüssiger Phase mit mindestens  
einem Oxocarbonsäurederivat vermischt wird.
11. Verfahren nach Anspruch 10,  
10 dadurch gekennzeichnet, dass  
nach der Kondensation eine Transformation der -COOR-  
Gruppe stattfindet, insbesondere eine Umetherung,  
Umesterung und/oder Amidierung.
- 15 12. Verfahren nach Anspruch 10 oder 11,  
dadurch gekennzeichnet, dass  
das Kondensationsprodukt durch Erhitzen ausgehärtet wird.
- 20 13. Verfahren nach mindestens einem der vorhergehenden  
Ansprüche,  
dadurch gekennzeichnet, dass  
das Kondensationsprodukt durch Reaktion mit der  
Esterfunktionalität in andere Polymere eingebaut wird.

### Zusammenfassung

Die Erfindung betrifft ein Aminotriazin-Kondensationsprodukt,  
5 insbesondere ein Melamin-Kondensationsprodukt, das durch  
Reaktion von einem Aminotriazin, insbesondere Melamin mit  
einem Oxocarbonsäurederivat hergestellt wird. Weiterhin  
betrifft die Erfindung sowohl die Verwendung, als auch ein  
Verfahren zur Herstellung dieses Aminotriazin-  
10 Kondensationsproduktes.

Damit wird ein formaldehydfreies oder formaldehydarmes und  
damit gesundheitlich besser verträgliches Aminotriazin-  
Kondensationsprodukt bereitgestellt, dessen Reaktion gut  
15 steuerbar ist.